

变形晶粒三叉晶界迁移过程的晶体相场模拟*

Phase Field Crystal Simulation of Trigrain Boundary Migration of Deformed Grain

黄世叶¹, 邓芊芊¹, 黄礼琳^{1,2}, 罗志荣^{1,2}, 高英俊^{1**}

HUANG Shiye¹, DENG Qianqian¹, HUANG Lilin^{1,2}, LUO Zhirong^{1,2}, GAO Yingjun¹

(1. 广西大学物理科学与工程技术学院, 广西高校新能源重点实验室, 广西南宁 530004; 2. 玉林师范学院物理科学与工程技术学院, 广西玉林 537000)

(1. Guangxi Key Laboratory of Novel Energy Materials of College and University, College of Physics Science and Engineering, Guangxi University, Nanning, Guangxi, 530004, China; 2. Institute of Physics Science and Engineering Technology, Yulin Normal University, Yulin, Guangxi, 537000, China)

摘要:【目的】研究纳米多晶材料受力变形过程中微观结构(如内部晶界, 位错等)的演化过程, 揭示纳米多晶材料受应力作用的微观机理。【方法】通过晶体相场(Phase field crystal, PFC)模型, 模拟多晶样品在外加应力作用下的变形过程, 分析内部畸变能的变化情况。【结果】在外加双轴动态加载作用下, 当应变较小时, 样品中的晶粒没有发生较大的变形, 以位错沿着晶界运动为主。随着应变的增加, 样品开始出现晶粒旋转、晶粒吞并、大小角晶界迁移运动、三叉晶界发射和接收位错等现象。晶界释放位错有助于减少晶界表面能; 吸收位错则增加了晶界表面能。【结论】晶体相场方法可以有效模拟多晶体材料塑性变形过程的微观结构演化。

关键词: 晶体相场 模拟 晶界 位错

中图分类号: TG111.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1005-9164(2017)06-0534-06

Abstract:【Objective】The evolution process of microstructure (such as the internal grain boundaries, dislocations, etc.) during the stress deformation of nanometer polycrystalline materials was studied to reveal the microscopic mechanism of the stress caused by nanometer polycrystalline materials. 【Methods】The deformation process of polycrystalline samples under external stress was simulated by the phase field crystal (PFC) model and the change of internal distortion energy was analyzed. 【Results】Under the effect of adding two-axis dynamic loading, the grain in the sample did not undergo large deformation at early stages, and the dislocation was mainly along the grain boundary. With the increase of strain, the samples began to appear the phenomena of the grain rotation, grain swallowing, large-angle angular grain boundary migration, the dislocation in triple junction was emitted and absorbed. Dislocation at the grain boundary helped to reduce the surface energy of the grain boundary. Absorption dislocation increased the surface energy of the grain boundary. 【Conclusion】The phase field crystal method could effectively simulate the plastic deformation process of polycrystalline materials.

Key words: phase field crystal, simulation, grain boundary, dislocation

收稿日期: 2017-07-19

作者简介: 黄世叶(1993—), 男, 硕士研究生, 主要从事材料纳微结构的设计研究。

* 国家自然科学基金项目(51161003, 51561031)和广西自然科学基金重点项目(2012GXNSFDA053001)资助。

** 通信作者: 高英俊(1962—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事材料纳微结构的设计与模拟实验研究。E-mail: gaoyj@gxu.edu.cn.

0 引言

【研究意义】工程使用的金属材料一般是由若干

晶粒组成的多晶体,晶粒与晶粒之间由于取向不同,在二晶交界处形成晶界。晶界中包含很多缺陷结构,如位错,空位,间隙原子等。材料在加工过程中受到不同的加载作用,如挤压、拉伸,以及温度的影响等,都直接引起材料内部微结构的变化。然而,晶粒内部是如何变化的,这一问题一直在困扰着人们,也是材料科学研究领域的难点和重点^[1-3]。【前人研究进展】在过去,由于实际中多晶材料变形演化的复杂性,使用实验方法直接进行原位观测微观组织变化是相当困难的。随着如今计算机技术的飞速发展,计算机仿真技术在很大程度上解决了上述问题。【本研究切入点】晶体相场(PFC)法^[4-5]基于经典密度泛函同时结合了传统相场方法,用局域密度场表示序参量,成功地实现模拟材料微观组织结构的实时演化。经过近年来的发展,PFC方法在模拟晶体断裂、相结构转变、纳米晶粒长大、位错滑移与攀移等方面都有许多的应用^[6-14]。【拟解决的问题】采用PFC法模拟纯物质的纳米多晶结构,研究多晶材料在应力作用下缺陷运动情况,探究晶界位错缺陷的运动规律,揭示纳米多晶体材料塑性变形的微观细节和机理。

1 PFC模型

PFC模型能够揭示晶体点阵周期结构特性以及空间分辨尺度为原子尺度,时间尺度为扩散时间尺度下的纳微结构演化^[10-11]。对于固态晶体材料,其原子的位置呈规则周期性排列,通过引入周期性相场变量 $\rho(r)$,其空间分布的极大值位置对应于原子点阵的位置;对于均匀相(液相等)中的原子密度分布为均匀分布,其值为常量。用周期原子密度函数 $\rho(r)$ 作为相场变量,要符合上述两方面的要求,其表达式可以写成^[4-5]

$$\rho(r) = \sum_{n,m} a_{n,m} e^{iG \cdot r} + \rho_0, \quad (1)$$

式中,等号右边第1项反映的是晶格原子的周期排列结构特征,其中 G 为倒格子矢量, r 为空间坐标矢量;第2项反映的是均匀相(如液相)等的原子密度均匀分布。此时,系统无量纲的自由能函数可以写成^[4-5]

$$F = \int \left\{ \frac{\epsilon}{2} [\gamma + (1 + \nabla^2)^2] \rho + \frac{\rho^4}{4} \right\} dr^3, \quad (2)$$

式中, ϵ 为与温度有关的参数; ∇^2 为拉普拉斯算符。

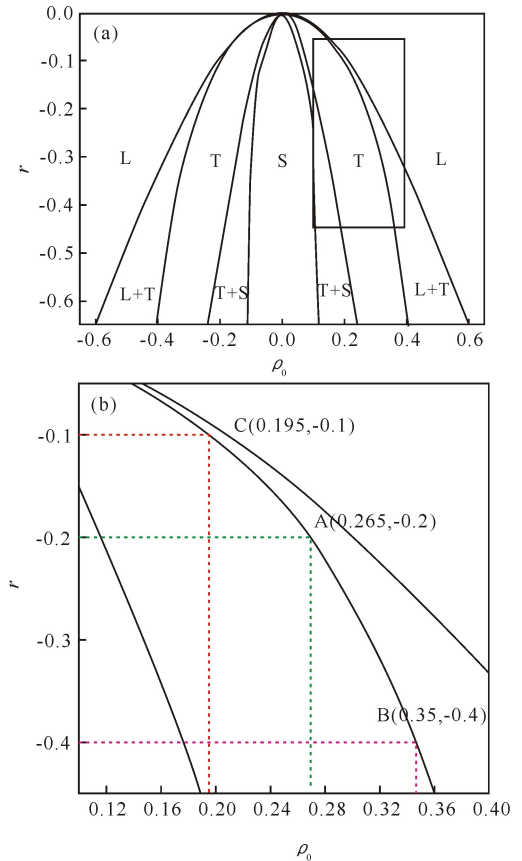
在单模近似下,由二维体系自由能取极小值,可以求得公式(2)的晶体相的一个稳定特解为^[4-5]

$$\rho(r) = A \left[\cos(qx) \cos\left(\frac{qy}{\sqrt{3}}\right) - \frac{1}{2} \cos\left(\frac{2qy}{\sqrt{3}}\right) \right] + \rho_0, \quad (3)$$

式中, $A = \frac{4}{5} \rho_0 + \frac{4}{15} \sqrt{-15\gamma - 36\rho_0^2}$,反映六角晶相

原子密度周期结构的振幅, $q = \frac{\sqrt{3}}{2} \rho_0$ 为平均密度。

图1为晶体相场的单模二维相图^[4-5],其中的平衡相分别为条状相、六角相和液相。



L为液相、T为六角相、S为条状相;(b)为参数选取,即(a)的方形区域放大图

L is liquid phase, T is hexagonal phase, S is stripe phase; (b) is parameter selection, i. e. magnified image of the box in the (a)

图1 二维PFC模型相图^[4-5]

Fig. 1 Phase diagram of 2D PFC model^[4-5]

2 动力学方程与数值计算

采用保守场Cahn-Hilliard动力学方程^[4-5]描述原子密度随时间的演化。该方程具体如下:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \nabla^2 \frac{\delta F}{\delta \rho} = \nabla^2 \{ \rho^3 + [\gamma + (1 + \nabla^2)^2] \rho \}, \quad (4)$$

式中, t 为时间变量。对无量纲动力学演化方程(4),采用半隐式傅里叶伪谱方法求解,其中的时间偏导数用欧拉迭代法处理,详细的计算步骤可见文献^[15-17]。

3 样品设置及参数选取

采用PFC法研究面心立方结构^[111]面的二维晶体结构,设置样品的空间尺寸为 $L_x \times L_y =$

$1024\Delta x \times 1024\Delta y$, 空间步长为 $\Delta x = \Delta y = \pi/4$, 样品的上下左右边界均采用周期性边界条件。在样品弛豫和加应力演化过程中, 时间步长为 $\Delta t = 0.5$ 。

依据图 1 的相图, 选择模拟参数在六角相(T 相)范围, 靠近与液相共存区域, 这是为了保证体系处于六角相的同时, 液相也能稳定存在。样品制备选取温度 $r = -0.2$, 平均密度 $\rho_0 = 0.265$, 在 y 方向加载压应变, x 方向加载拉应变。本研究中, 模拟实验样品设置为 12 个六角晶粒, 每个晶粒都有自己的取向(图 2a)。经过 100 000 步的时间步数的弛豫, 消除内

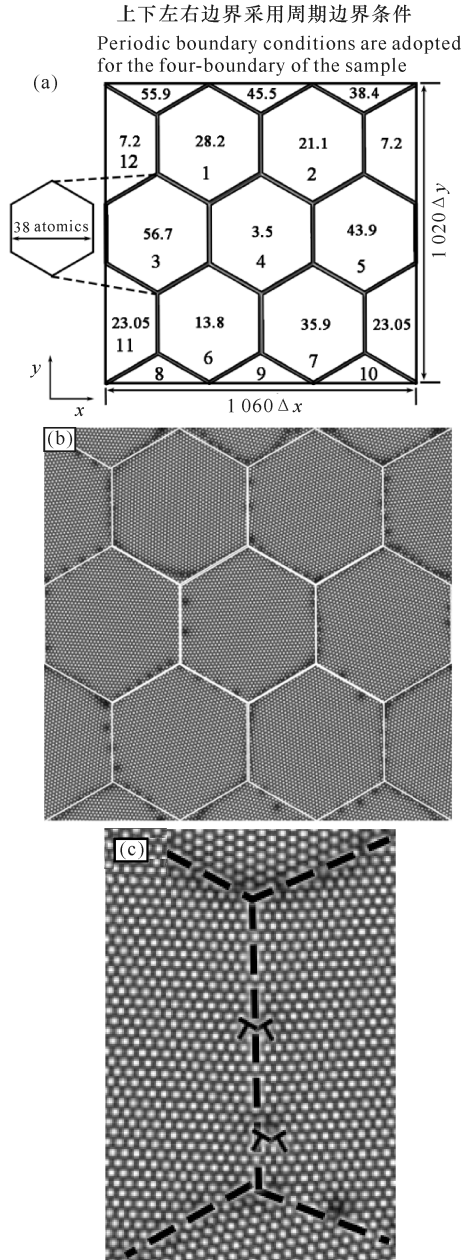


图 2 (a)样品的晶粒和晶界结构参数设计,(b)制作的模拟实验样品,(c)三叉晶界的位错结构

Fig. 2 (a) The design of the structure parameter of the grain and grain boundary of sample, (b) The sample for simulation experiment, (c) The dislocation structure of the tri-junction boundary (GB)

应力, 使得样品晶界结构与内部能量稳定下来, 得到了如图 2b 的结果。从结果上来看, 得到的稳定晶界与初始设置的边界较为一致。采用等面积法模拟对样品施加挤压与拉伸加载。如图 2c 给出了三叉晶界的位错结构。

4 结果与分析

从图 3a~b 可以看到, 在应变 $\epsilon < 0.02$ 前, 样品中的晶粒没有发生较大的变形, 以位错沿着晶界运动为主。随着应变的增加(图 3c~i, $\epsilon > 0.02$), 样品开始出现了晶粒旋转和晶粒吞并等现象。晶粒旋转主要发生在取向差较小的两晶粒之间(如图 3b 中黄色方框所示), 而晶粒吞并现象发生在大晶粒与小晶粒之间。此外, 在变形的后期阶段(图 3e~i), 进一步出现了晶界迁移, 并且晶粒粗化加速, 而晶界也变得平直化。位错与晶界的运动在变形过程中起到主导作用。

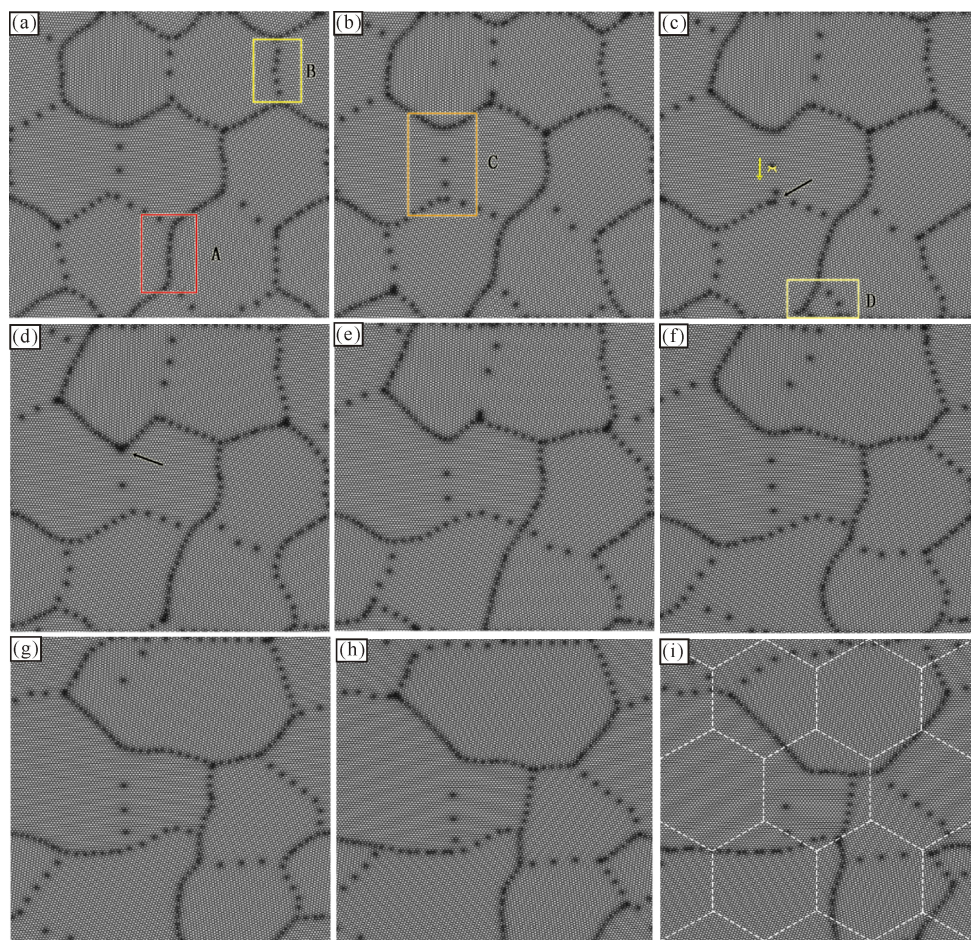
在多晶体材料热处理过程中, 从晶界的稳定角度分析, 晶粒的生长有两种情况: 弯曲的晶界势必向着平直化方向发展; 当晶粒边界数少于 6 时, 其晶界必然向外突出。由于晶界曲率的存在, 晶界向着曲率中心迁移, 这就导致了晶粒缩小; 相反, 当晶粒晶界数大于 6 时, 其晶界必然向内凹, 由于晶界曲率的存在, 晶界向着曲率中心迁移, 这就导致了晶粒生长。以图 3 中的晶粒 4 为例, 与图 2a 的晶粒 2 对照, 可见晶粒 4 的边界数从开始的 6 变为 5, 最后变为 4, 整个过程晶粒 4 的尺度不断减小。

图 3a 中 A 和 B 方框表示受到应变作用, 大角度非对称晶界与小角度对称晶界上的位错运动。图 3b 中 C 框是一个三叉晶界。图 3c~d 中的箭头显示三叉晶界正在接收和发射位错, 而在这个过程中, 还发生了小晶粒被周围大晶粒吞并的情况(图 3c 中的 D 框), 这些情况在下文会详细分析。

图 4a1~a4 中显示在三叉晶发射位错之前, 晶界会向前出现尖端, 接着形成一个位错, 然后位错发射离开晶界, 之后晶界则恢复到原来的情况。在三叉晶界处, 由于原子排列较为复杂, 在应变的作用下, 位错的运动往往会形成塞积, 这时候如果没有较好地释放应变, 容易形成晶格扭曲, 导致三叉晶界发生开裂, 形成空洞^[2]。由图 4b1~b4 可见, 在晶界上的位错 B 其柏氏矢量与其它晶界运动过来的位错 A 的柏氏矢量存在一个夹角, 因此, 当位错 A 遇到晶界时, 与位错 B 反应, 生成一个新的位错。位错反应写成如下公式:

$$B_A + B_B = (b_1 + b_2) + (b_3 + b_4) = b_1 + b_4 = B_C,$$

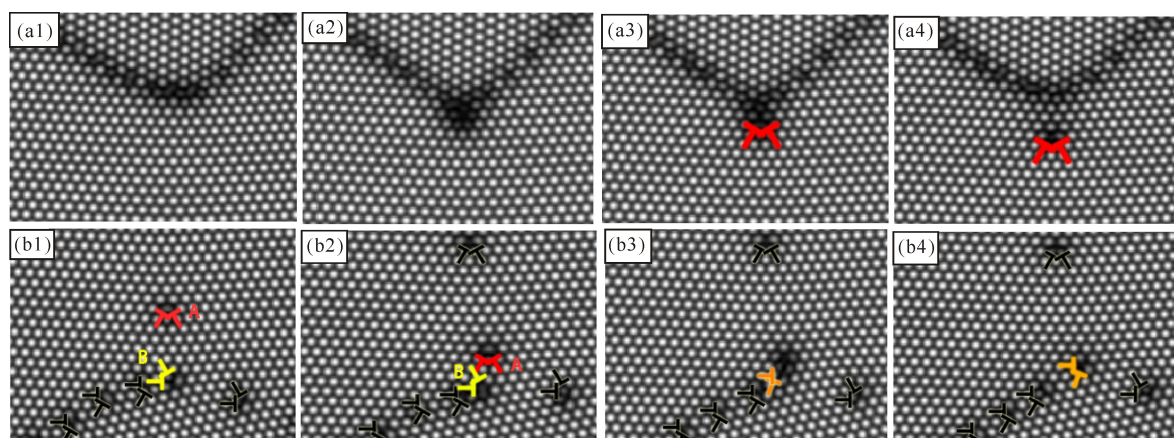
式中分量 $b_2 = -b_3$ 。说明晶界吸引位错的一个原因相反。是外来位错与晶界上位错的柏氏矢量(或者其分量)



(a) $\epsilon = 0$; (b) $\epsilon = 0.02$; (c) $\epsilon = 0.03$; (d) $\epsilon = 0.04$; (e) $\epsilon = 0.06$; (f) $\epsilon = 0.08$; (g) $\epsilon = 0.10$; (h) $\epsilon = 0.12$; (i) $\epsilon = 0.15$

图3 样品微结构的演化过程

Fig. 3 Evolutionary process of microstructure in the sample



(a1) $t = 69\ 500$; (a2) $t = 84\ 500$; (a3) $t = 87\ 500$; (a4) $t = 88\ 500$; (b1) $t = 36\ 500$; (b2) $t = 60\ 500$; (b3) $t = 61\ 500$; (b4) $t =$

63 500

(a) 三叉晶界发射位错; (b) 三叉晶界吸收位错

(a) Emission dislocation in tri-GB junctions; (b) Absorption dislocation in tri-GB junctions

图4 三叉晶界在纳米多晶材料变形过程中的演化

Fig. 4 Evolution of the tri-GB of polycrystal materials during the deformation

图 5d1 展示了晶界发射位错的自由能变化,在释放位错的过程中,区域内自由能不断上升,直到位错发射出晶界 ($t = 87\ 500$),能量达到了顶峰,这时候位错已经脱离了晶界,区域内的原子排列畸变减小,晶界恢复稳定,能量开始下降。这表明释放位错有助于减少晶界表面能。图 5d2 展示了晶界吸收位错的自由能变化过程,一般而言,晶界对位错存在吸引和排斥两种作用^[18],这两种作用决定了晶界对位错的行为。由图 5d2 可见,整个过程的能量呈上升趋势,特别是晶界吸收了位错之后,能量上升速度加快。这是由于晶界吸收了位错,增加了晶界表面能。

吸收位错则增加了晶界表面能。这些现象在其他的模拟方法,如分子动力学方法中也观察到了,表明 PFC 方法可以有效模拟多晶体材料塑性变形过程。

参考文献:

[1] SHEIN I R, KIĪKO V S, MAKURIN Y N, et al. Elastic parameters of single-crystal and polycrystalline wurtzite-like oxides BeO and ZnO: Ab initio calculations [J]. *Physics of the Solid State*, 2007, 49(6): 1067-1073.

[2] ZHU L F, FRIÁK M, LYMPERAKIS L, et al. Ab initio study of single-crystalline and polycrystalline elastic properties of Mg-substituted calcite crystals [J]. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*, 2013, 20: 296-304.

[3] 邓芊芊, 胡绪志, 黄礼琳, 等. 条状晶位错运动的晶体相场模拟 [J]. *广西科学院学报*, 2017, 33(4): 223-227. DENG Q Q, HU X Z, HUANG L L, et al. Phase field crystal study on dislocations movement in strip grain [J]. *Journal of Guangxi Academy of Sciences*, 2017, 33(4): 223-227.

[4] ELDER K R, KATAKOWSKI M, HAATAJA M, et al. Modeling elasticity in crystal growth [J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(24): 245701.

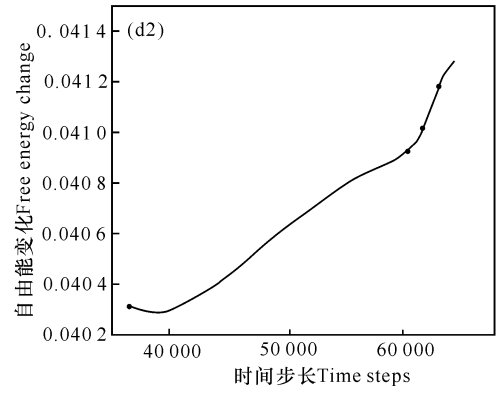
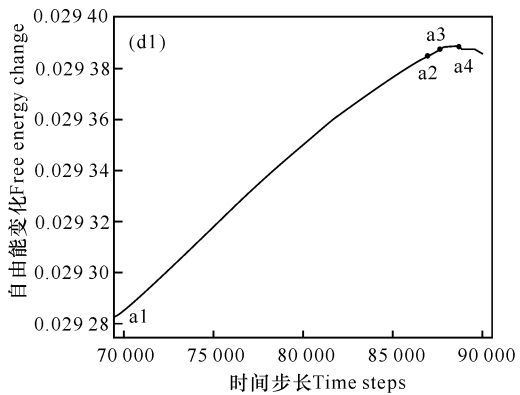
[5] ELDER K R, GRANT M. Modeling elastic and plastic deformations in nonequilibrium processing using phase field crystals [J]. *Phys Rev E Stat Nonlin Soft Matter Phys*, 2004, 70(1): 051605.

[6] 高英俊, 杨瑞琳, 王玉玲, 等. 空位晶体相场模型模拟二维晶体相形貌图 [J]. *广西科学*, 2015, 22(5): 485-491. GAO Y J, YANG R L, WANG Y L, et al. Phase field model simulation of bumps and holes pattern of two dimension crystals [J]. *Guangxi Sciences*, 2015, 22(5): 485-491.

[7] 黄世叶, 李胜男, 胡绪志, 等. 晶界位错运动的空位晶体相场模拟 [J]. *广西科学*, 2016, 23(5): 459-464. HUANG S Y, LI S N, HU X Z, et al. Vacancy phase-field-crystal simulation of dislocation motion of grain boundary [J]. *Guangxi Sciences*, 2016, 23(5): 459-464.

[8] 杨瑞琳, 刘瑶, 胡绪志, 等. 双位错滑移运动的晶体相场模拟 [J]. *广西科学*, 2016, 23(5): 443-447. YANG R L, LIU Y, HU X Z, et al. Phase-field-crystal simulation of double dislocation gliding [J]. *Guangxi Sciences*, 2016, 23(5): 443-447.

[9] 黄礼琳, 邓芊芊, 卢昱江, 等. 缺陷预熔化现象的晶体相场模拟 [J]. *广西科学院学报*, 2017, 33(4): 234-239. HUANG L L, DENG Q Q, LU Y J, et al. Phase field crystal simulation of defect pre-melting phenomenon [J]. *Journal of Guangxi Academy of Sciences*, 2017, 33(4): 234-239.



(d1) 晶界发射位错; (d2) 晶界吸收位错

(d1) Emission dislocation of the GB; (d2) Absorption dislocation of the GB

图 5 发射位错与吸收位错能量变化

Fig. 5 Energy change of emission dislocation and absorption dislocation of the GB

5 结论

采用 PFC 模型研究纯物质多晶体材料变形过程内部结构演化过程,通过对模拟结果的分析得到如下结果:采用 PFC 模拟多晶体塑性变形,在外加双轴动态加载作用下,当应变较小时,样品中的晶粒没有发生较大的变形,以位错沿着晶界运动为主。随着应变的增加,观察到晶粒旋转、晶粒吞并、大小角晶界迁移运动等现象。晶界释放位错有助于减少晶界表面能;

- [10] 卢昱江,孔令一,邓芊芊,等.微裂纹起裂扩展机理的晶体相场模拟[J].广西科学院学报,2017,33(4):240-245.
LU Y J, KONG L Y, DENG Q Q, et al. Phase field crystal simulation of nucleation and propagation of micro-cracks [J]. Journal of Guangxi Academy of Sciences, 2017, 33(4): 240-245 .
- [11] 高英俊,罗志荣,邓芊芊,等.韧性材料的微裂纹扩展与分叉的晶体相场模拟[J].计算物理,2014,31(4):471-478.
GAO Y J, LUO Z R, DENG Q Q, et al. Phase-field-crystal modeling of microcrack propagation and branching in ductile materials [J]. Chinese Journal of Computational Physics, 2014, 31(4): 471-478.
- [12] HIROUCHI T, TAKAKI T, TOMITA Y. Development of numerical scheme for phase field crystal deformation simulation [J]. Computational Materials Science, 2009, 44(4): 1192-1197.
- [13] GREENWOOD M, PROVATAS N, ROTTLE J. Free energy functionals for efficient phase field crystal modeling of structural phase transformations [J]. Phys Rev Lett, 2010, 105(4): 045702.
- [14] CONRAD H, NARAYAN J, JUNG K. Grain size softening in nanocrystalline TiN [J]. International Journal of Refractory Metals & Hard Materials, 2005, 23(4): 301-305.
- [15] BERRY J, PROVATAS N, ROTTLE J, et al. Defect stability in phase-field crystal models: Stacking faults and partial dislocations [J]. Physical Review B, 2012, 86(22): 224112.
- [16] BERRY J, ELDER K R, GRANT M. Melting at dislocations and grain boundaries: A phase field crystal study [J]. Physical Review B, 2008, 77(22): 224114.
- [17] 孔令一,卢昱江,邓芊芊,等.二维大取向角对晶界湮没过程的晶体相场模拟[J].广西科学院学报,2017,33(4):228-233.
KONG L Y, LU Y J, DENG Q Q, et al. Phase field crystal simulation of grain boundary annihilation with two dimensional large orientation angle [J]. Journal of Guangxi Academy of Sciences, 2017, 33(4): 228-233 .
- [18] ROTH C C, MOHR D. Effect of strain rate on ductile fracture initiation in advanced high strength steel sheets: Experiments and modeling [J]. International Journal of Plasticity, 2014, 56(4): 19-44.

(责任编辑:米慧芝)